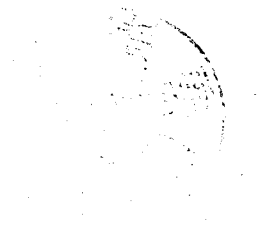


# 浮遊している過冷却珪酸塩メルトからのコンドリュール組織形成

著者	塚本 勝男
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10097/39694">http://hdl.handle.net/10097/39694</a>



---

# 浮遊している過冷却珪酸塩メルトからの コンドリュール組織形成

---

16340163

平成16年度～平成17年度科学研究費補助金  
(基盤研究 (B))研究成果報告書

平成18年3月

研究代表者 塚本 勝男

(東北大学大学院 理学研究科 助教授)

## はしがき

原始太陽系の形成初期にできるコンドリュールは、どれだけの時間をかけてできたのでしょうか？この疑問に答えるために、コンドリュールメルト球を浮遊した状態でコンドリュールの形成実験を世界に先駆けて行った。この浮遊実験の結果は大変驚くべきことであった。これまで数日から数ヶ月かけてゆっくり形成されと思っていたコンドリュールは、たった数秒でできることになった。

### 研究組織

研究代表者： 塚本 勝男（東北大学大学院理学研究科助教授）

研究分担者： 中村 教博（東北大学大学院理学研究科助手）

研究分担者： 横山 悦郎（学習院大学計算機センター教授）

	直接経費	間接経費	合計
平成16年度	4,500,000	0	4,500,000
平成17年度	2,700,000	0	2,700,000
総計	7,200,000	0	7,200,000

交付決定額(配分額)

### 研究発表

#### (1) 学会誌等

H. Kobatake, K. Tsukamoto, H. Satoh, Two-step nucleation process of silicate interplanetary dust particles at the vicinity of silica melt, J. Crystal Growth 279 (2005) 186-194.

Nagashima, K., Tsukamoto, K., Satoh, H., Kobatake, H. and Dold, P., Reproduction of Meteoritic Silicate Spherules from Levitated, Hypercooled Melts. J. Crystal Growth, in press.

Cuppen, H.M., Beurskens, G., Kozaka, S., Tsukamoto, K., Smits, J.M.M., de Gelder, R., Grimbergen, R.F.P., and Meekes, H., Crystal Structure and Growth Behavior of Aspartame Form I-A. Crystal Growth & Design No.5, 3, 917-923, 2005.

Sazaki, G., Tsukamoto, K., Yai, S., Okada, M., Nakajima, K., In situ observation of dislocations in protein crystals during growth by advanced optical microscopy. Crystal Growth and Design, 5, 1729-1735, 2005.

Poodt, P.W.G. and Heijna, M.C.R., Tsukamoto, K., de Grip, W.J., Christianen P.C.M. and Maan, J.C., van Enkevort, W.J.P. and Vlieg, E., Suppression of convection using gradient magnetic fields during crystal growth of  $\text{NiSO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ . APPLIED PHYSICS LETTERS, No.87 214105-1, 2005.

Uehara, M. and Nakamura, N., Experimental and magnetic study of "dusty olivine" in chondrules: candidate of a reliable magnetic recorder of the early solar nebula.[Abstracts of the international symposium on "Spatial and temporal fluctuations in the Solid earth -clues to the future of our planet", (2005), Cp-02].

中村教博, 植原稔, 古地磁気情報としてのシュードタキライト・隕石. [東京地学協会 地学雑誌, (2005)]

Li, C., Tsukamoto, K., Satoh, H., The reduction and recovery of step velocity in crystal growth induced by convection variation under various gravities. J. of Crystal Growth 277 (2005) 560-565.

塚本勝男, 西村良浩, 横山悦郎, 「微小重力での結晶成長”その場”観察」, 可視化情報 25 No.98 (2005) 8-15.

塚本勝男, 宇宙環境利用の展望 第一章 溶液からの結晶成長 “その場” 観察の歴史, (JSUP 編) 1-27, 2006.

Dold, P., Ono, E., Tsukamoto, K., Sazaki, G., Step velocity in tetragonal lysozyme growth as a function of impurity concentration and mass transport conditions. J. Crystal Growth, in press.

Kobatake, H., Tsukamoto, K., Satoh, H., Nagashima, K., Nozawa, J., In-situ synthesis of silicate dust particles by flash heating. 地球惑星関連学会 2005 年合同大会予稿集 (CD-ROM), P058-014, 2005.

長嶋剣, 塚本 勝男, 佐藤 久夫, 浮遊法によるコンドリュール形成その場観察. 地球惑星関連学会 2005 年合同大会予稿集, P058-015(CD-ROM), 2005.

野澤純, 塚本勝男, 佐藤久夫, 小島秀和, 隕石マトリックス構成微粒子の形態と表面トポグラフ. 地球惑星関連学会 2005 年合同大会予稿集, P058-025(CD-ROM), 2005.  
佐崎元, 塚本勝男, 横山悦郎, 中嶋一雄, タンパク質結晶の成長におよぼす流れの効果. 日本結晶成長学会誌, 32, 3, 119, 2005.

野澤純, 塚本勝男, 佐藤久夫, 小島秀和, 隕石に残された46億年前のラセン成長ステップ. 日本結晶成長学会誌, 32, 3, 162, 2005.

野澤純, 塚本勝男, 佐藤久夫, 小島秀和, 隕石中の olivine 結晶表面に残された46億年前のらせんステップ. 日本鉱物学会 2005 年度年会 講演要旨集, 89, 2005.

佐藤久夫, 西村良浩, 塚本勝男, 上田晃, 上田真三, 加藤耕一, 位相シフト干渉顕微鏡を用いたスメクタイト溶解の光学計測. 日本鉱物学会 2005 年度年会 講演要旨集, 90, 2005.

長嶋剣, 佐藤久夫, 塚本勝男, 浮遊法によるコンドリュール形成その場観察. 日本鉱物学会 2005 年度年会 講演要旨集, 93, 2005.

Tsukamoto, K., Development of in situ observation of crystal growth in the last decade. Interface Mineralogy Abstract, 11, 2005.

Nagashima, K., Tsukamoto, K., Satoh, H., and Yokoyama, E., Chondrule formation from a hypercooled silicate melt by levitation method. Interface Mineralogy Abstract. 20, 2005.

Nozawa, J., Tsukamoto, K., Satoh, H., Kobatake, H., Nagashima, K., Spiral steps on cosmic particles crystallized 4.6 billion years ago. Interface Mineralogy Abstract, 53, 2005.

Tsukamoto, K., Recent Developments of in-situ Observation of Crystal Growth and Dissolution by Advanced Phase-shift Interferometry. The 3rd Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology Abstracts, BC01(CD-ROM), 2005.

Tsukamoto, K., Recent Developments of in-situ Observation of Crystal Growth and Dissolution by Advanced Phase-shift Interferometry. Sixth Japan-China Workshop on Microgravity Sciences(Abstract) , 137-138, 2005.

若山信子, 塚本勝男, 勾配磁場下の結晶成長による溶質対流の抑制(原理と計算). マイクログラビティ応用学会第 21 回学術講演会, 99, 2005.

## (2) 口頭発表

### 国内

Kobatake, H., Tsukamoto, K., Satoh, H., Nagashima, K., Nozawa, J., In-situ synthesis of silicate dust particles by flash heating. 地球惑星関連学会 2005 年合同大会, P058-014, 幕張, 5 月 22-26 日, 2005.

長嶋剣, 塚本 勝男, 佐藤 久夫, 浮遊法によるコンドリュール形成その場観察. 地球惑星関連学会 2005 年合同大会, P058-015, 幕張, 5 月 22-26 日, 2005.

野澤純, 塚本勝男, 佐藤久夫, 小島秀和, 隕石マトリックス構成微粒子の形態と表面トポグラフ. 地球惑星関連学会 2005 年合同大会, P058-025, 幕張, 5 月 22-26 日, 2005.

塚本勝男, 結晶成長 “その場” 観察、この 10 年間の歩み. 第 35 回結晶成長国内会議(NCCG35), 18pA04, 広島大学東広島キャンパス, 8 月 17-19 日, 2005.

野澤純, 塚本勝男, 佐藤久夫, 小島秀和, 隕石に残された46億年前のラセン成長ステップ. 第35回結晶成長国内会議(NCCG35), 19aC10, 広島大学東広島キャンパス, 8月17-19日, 2005.

野澤純, 塚本勝男, 佐藤久夫, 小島秀和, 隕石中のolivine結晶表面に残された46億年前のらせんステップ. 日本鉱物学会2005年度年会, K4-05, 愛媛大学城北キャンパス, 9月22-24日, 2005.

長嶋剣, 佐藤久夫, 塚本勝男, 浮遊法によるコンドリュール形成その場観察. 日本鉱物学会2005年度年会, 愛媛大学城北キャンパス, K4-09, 9月22-24日, 2005.

佐藤久夫, 西村良浩, 塚本勝男, 上田晃, 上田真三, 加藤耕一, 溶解界面で認められる振動挙動の光学計測. 日本鉱物学会2005年度年会, K4-10, 愛媛大学城北キャンパス, 9月22-24日, 2005.

若山信子, 塚本勝男, 勾配磁場下の結晶成長による溶質対流の抑制(原理と計算). マイクログラビティ応用学会第21回学術講演会, B109, 札幌, 11月28-29日, 2005.

#### 国際(日本で開催された国際学会も含む)

Tsukamoto, K., Abukawa, S., In-situ Observation of Crystal Growth under Various Environments. Mineralogical Museums, St. Petersburg, Russia, June 14-June 17, 2005.

Tsukamoto, K., Development of in situ observation of crystal growth in the last decade. Interface Mineralogy, Sendai, Japan, September 28-September 30, 2005.

Dold, P., Nishimura, Y., Petrova, E., Ono, E., Tsukamoto, K., Sazaki, G., Stability and defect generation during crystal growth of lysozyme. Interface Mineralogy, Sendai, Japan, September 28-September 30, 2005.

Yokoyama, E., Irisawa, T., Tsukamoto, K., Nagashima, K., and Satoh, H., Formation of rim patterns surrounding a chondrule during solidification using a phase field model. Interface Mineralogy, Sendai, Japan, September 28-September 30, 2005.

Yokoyama, E., Abukawa, S., Nishimura, Y., Tsukamoto, K., Putnis, C.V., A simple model in the double diffusion field composed of KBr solid and KCl liquid. Interface Mineralogy, Sendai, Japan, September 28-September 30, 2005.

Nagashima, K., Tsukamoto, K., Satoh, H., and Yokoyama, E., Chondrule formation from a hypercooled silicate melt by levitation method. Interface Mineralogy, Sendai, Japan, September 28-September 30, 2005.

Nozawa, J., Tsukamoto, K., Satoh, H., Kobatake, H., Nagashima, K., Spiral steps on cosmic particles crystallized 4.6 billion years ago. Interface Mineralogy, Sendai, Japan, September 28-September 30, 2005.

Tsukamoto, K., Recent Developments of in-situ Observation of Crystal Growth and Dissolution by Advanced Phase-shift Interferometry. The 3rd Asian Conference on Crystal Growth and Crystal Technology, Beijing, China, October 16–October 18, 2005.

Tsukamoto, K., Recent Developments of in-situ Observation of Crystal Growth and Dissolution by Advanced Phase-shift Interferometry. Sixth Japan–China Workshop on Microgravity Sciences, 25B194, Saga, Japan, October 22–October 25, 2005.

Satoh, H., Nishimura, Y., Tsukamoto, K., Ueda, A., Ueta, S., and Kato, K., Nanometer-scale dissolution of single particle smectite observed with a phase-shift interferometer microscope. 2005 MRS Fall Meeting, S5.13, Boston, USA, November 28–December 2, 2005.

Satoh, H., Nishimura, Y., Tsukamoto, K., Ueda, A., Ueta, S., and Kato, K., Optical metrology of nano-scale mineral dissolutions using a phase-shift interference microscope. 2005AGU Fall Meeting, V43B-1578, San Francisco, USA, November 5–November 9, 2005.

Tsukamoto, K., Dold, P., Nishimura, Y., Satoh, H., Recent development of in-situ observation of crystal growth by advanced optical methods. Special Seminar at Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, USA, December 19, 2005.

### (3) 出版物

塚本勝男 (C8 章. 3. 2. a) , 結晶成長メカニズム, 航空宇宙工学便覧 (丸善) 印刷中

## 1. コンドリュール研究の意義

コンドリュールとは始原的隕石（コンドライト）に多量に含まれる珪酸塩球結晶（ $\phi 0.1\text{--}1.0\text{ mm}$ ）であり（e.g., Jones et al., 2000; Zanda, 2004），コンドライト中に占める割合はおよそ 50 wt.%にあたる（Grossman et al., 1988a）。コンドリュールは太陽系形成以前である約 46 億年前に珪酸塩メルトが冷却して結晶化したものであるが，珪酸塩がメルト化するような高温を作った加熱原因は不明である。

そこで，不完全溶融メルトから形成したと考えられている斑晶質コンドリュール（Figure 1.1a）に対し，完全溶融したメルトから成長した放射状輝石コンドリュール（Figure 1.1b），棒状カンラン石コンドリュール（Figure 1.1c）は天然の岩石には見られない特異な結晶組織を持つことから，結晶化条件を実験的に求める試みが行われてきた（e.g., Tsuchiyama et al., 1980, 1981a; Lofgren et al., 1986, 1989, 1990, 1996）。

これらの実験によって一部のコンドリュール結晶組織を作ることに成功し，その冷却速度がおよそ  $100\text{--}1000^\circ\text{C}/\text{hour}$  であったことからコンドリュール形成イベントの冷却速度も同様であると結論づけられている。

ただしこのような徐冷モデルに対し，天体物理学的モデルから示唆されるコンドリュール形成プロセスはパラメータによるとはいえ急速なプロセスであり，冷却速度のパラメータは2桁程度異なる（e.g.,  $100\text{ K/s}$  shown in Iida et al., 2001）。

この矛盾の原因として，過去の再現実験の様々な不備があげられる。例えば宇宙空間で浮遊環境から形成したコンドリュールに対して白金ワイヤー等のホルダーを用いているにもかかわらず接触部からの不均質核形成についての見積もりが無いことや，その場観察していないため結晶化過程や温度が不明であることがあげられる。

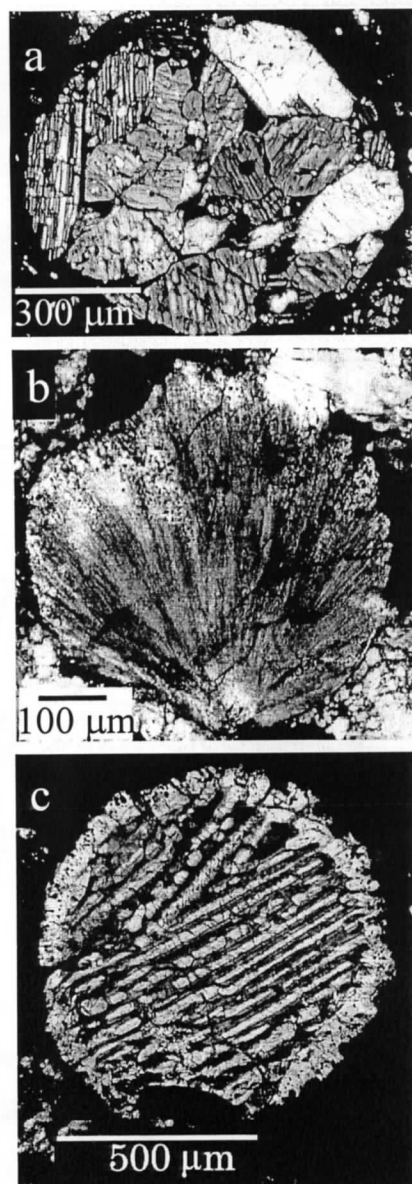


Figure 1.1 Polarized image of the porphyritic (a) and nonporphyritic (b, c) chondrules. (a) is porphyritic pyroxene (Norton, 2002), (b) is radial pyroxene (Norton, 2002), and (c) is barred olivine chondrules



近年様々な試料を浮遊させる技術が成熟してきており、非接触浮遊環境からの実験を行うことで接触部の効果をより直接的に議論できるようになってきた。そのような背景を受けて、研究代表者である塚本等は Barred olivine コンドリュールに見られるリム構造を始めて実験的に再現した (Tsukamoto et al., 1999). その手法はガス超音波浮遊炉を用いて非接触浮遊 forsterite ( $\text{Mg}_2\text{SiO}_4$ ) メルトの結晶化実験を行うというものであり、その結果によると 700 K という非常に大きな過冷却 forsterite メルトからの結晶化によりリム構造が再現された。その後 Tangeman は塚本等と同様にガス超音波浮遊法を用いることで forsterite 組成のガラスを形成することにも成功している (Tangeman et al., 2001).

これらの結果は非接触浮遊環境では珪酸塩メルトの結晶化が困難であることを示している。そのため、コンドリュール形成を考察する上で、非接触浮遊メルトからの結晶化実験を行い、コンドリュールメルトの物性、結晶化過程を調べることが必須となる。そこで、まずはコンドリュール結晶化過程をその場観察するための浮遊装置の開発を行った。

## 2. ガスジェット浮遊装置の開発

本研究では試料を浮遊させる方法としてガスジェット浮遊炉を用いた。ガスジェット浮遊炉は円柱状のアルミニウムディフューザから構成されている。それは **Figure 2.1a** に示した断面図のように上部は逆円錐状にくりぬかれ、それに通じるようにガスの通り道が作られている。そのガスの通り道は T 字型に直径 2 mm のガスが通る穴が開いており、円柱の上面には逆円錐状に切り込みを入れた形状になっている。このくぼみに出発試料を置き、Ar ガスを流し続けることで試料を浮遊させることができる。ディフューザの外観は **Figure 2.1b** のとおりである。

今回ガスジェット浮遊炉のために用意された実験装置系の概要を **Figure 2.2** に示す。作製した球形試料をガスジェット浮遊炉で浮遊させるために、Ar ガス流量を流量計で調節する。浮遊させた試料は CO<sub>2</sub> レーザー（波長 $\lambda = 10.6 \mu\text{m}$ ）によって加熱され、レーザー出力を調整することで温度が調整される。レーザー加熱法の利点は、周辺の雰囲気とは無関係に試料を直接加熱することができること、出力調整により急加熱・急冷が可能であることである。試料の温度は放射温度計によって測定され、その温度はデータロガーによって記録される。試料の結晶化過程は高速カメラを含めた 2 つの CCD カメラによって録画される。

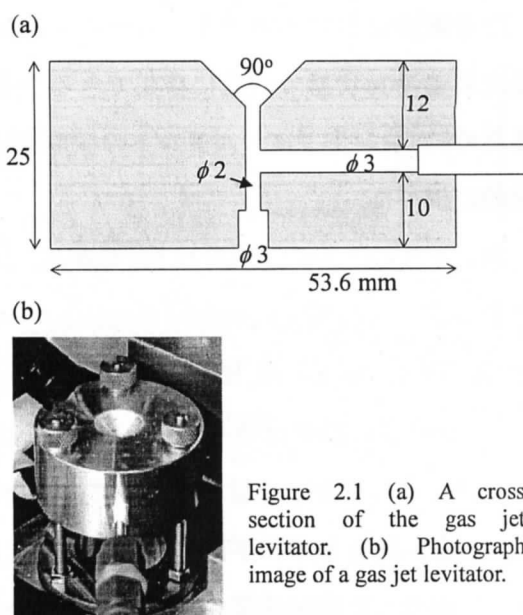


Figure 2.1 (a) A cross section of the gas jet levitator. (b) Photograph image of a gas jet levitator.

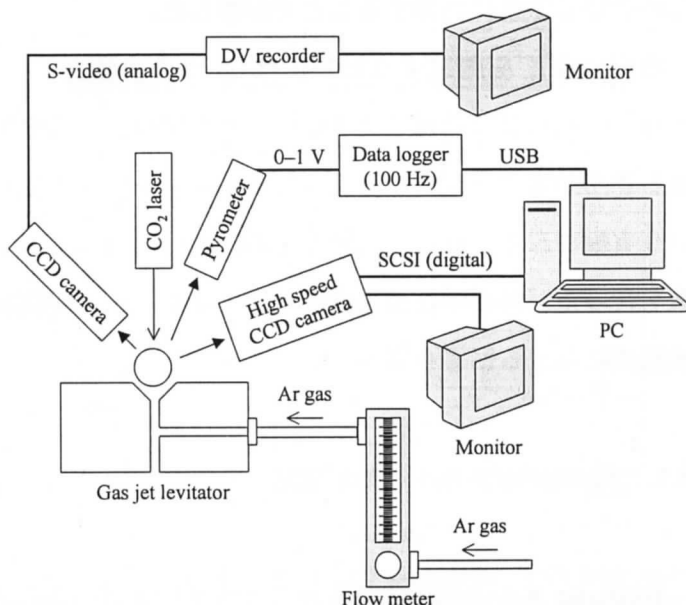


Figure 2.2 A schematic illustration of gas jet levitator system.

試料の結晶化過程は高速カメラを含めた 2 つの CCD カメラによって録画される。

### 3. 浮遊メルトの結晶化実験

浮遊環境におけるコンドリュールメルトがどの程度高過冷却状態で安定に存在できるかを議論するために、コンドリュールメルトの核形成頻度を実験的に調べた。

コンドリュールの主成分は Mg 珪酸塩、具体的には forsterite ( $\text{Mg}_2\text{SiO}_4$ )–enstatite ( $\text{MgSiO}_3$ )系の組成を示し、それに Fe, Ca, Al, Na 等が含まれている。よって、出発物質の組成は様々なものを用意した。中でも主成分である Mg 珪酸塩を中心に実験を行った。その MgO– $\text{SiO}_2$  系の相平衡図を **Figure 3.1** に示す。黒丸は用意した出発物質の組成を表している。出発物質は試薬を合成してその粉末を  $\text{CO}_2$  レーザーで加熱熔融した後に冷却することで作製した。

核形成頻度を測定するためには 2 つの実験を行った。1 つ目は冷却速度を変化させた場合にどの温度で核形成するかという実験で、2 つ目はある過冷却度で一定になるように試料温度を保ち、核形成がどのぐらいの待ち時間で起こるかという実験である。また、比較のために  $\phi 0.1$  白金ロジウム線 (Rh = 13 or 30%) で試料を保持した実験も行った。この手法は過去のコンドリュール再現実験で一般に見られた方法であり、接触部が核形成に与える影響を調べるために行った。

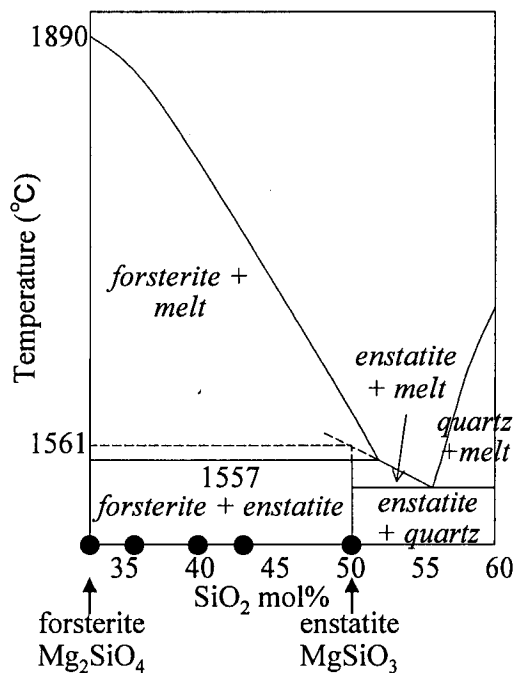


Figure 3.1 Phase diagram of MgO– $\text{SiO}_2$  system. Circles show the compositions of the starting materials.

#### 3.1. Forsterite メルト核形成温度

Forsterite メルト核形成頻度の温度依存性を調べるために、完全熔融したメルトを冷却する際の冷却速度を変えた実験を行った。それらの実験によって得られた冷却曲線が **Figure 3.2a** である。それによれば、冷却速度が速い時は核形成温度が低く、冷却速度が遅い時は核形成温度が高くなる傾向が見られた。これは、過冷却度が大きくなるにつれ核形成頻度が増す結果、時間的猶予のある遅い冷却速度の場合に核形成過冷却度が小さくなると考えられる。核形成が起こった温度は  $730\text{--}880^\circ\text{C}$  ( $1010 < \Delta T < 1160 \text{ K}$ ) で、冷却中にメルトの温度が融点を通じた時間を 0 秒とすると、3–7 秒後に核形成し結晶化が起こった。

以上のように冷却速度に応じた核形成温度と結晶化の違いが見られたが、メルトを少し高めの温度である 900°C で保持したところ、核形成は 1 分待っても起こらなかった (dashed line in Figure 3.2a). そこで、CO<sub>2</sub> レーザー電源を切ると、温度が 800°C 付近まで下がったところでようやく核形成した。以上のことから、forsterite メルトの核形成頻度は 900 °C ( $\Delta T = 1000$  K) 付近まで温度が下がると急激に増加することがわかった。

### 3.2. Enstatite メルト核形成温度

浮遊した Enstatite メルトを冷却したところ Figure 3.3a のような冷却曲線が得られた。それによれば、PtRh ワイヤで保持されたメルトが核形成 (Figure 3.3e, f) しているのに対し、非接触浮遊メルトはその温度でも核形成していない。Forsterite メルトでも同様の傾向は確認されたが、大きく異なるのが非接触浮遊 enstatite メルトは結晶化が確認できないまま低温まで温度が下がってしまうことである。

Richet and Bottinga (1986)によると、enstatite メルトのガラス転移点が 1020 K (747°C,  $\Delta T_g = 814$  K) と報告されているので、核形成頻度が低いために結晶化が始まる前にガラス転移点を下回ったと考えられる。そこでこの回収試料を薄片にして偏光顕微鏡で観察するとガラス化していることがわかった。一方、PtRh ワイヤによって保持された enstatite メルトは核形成し結晶化過程が観察され、回収試料も結晶化していた。

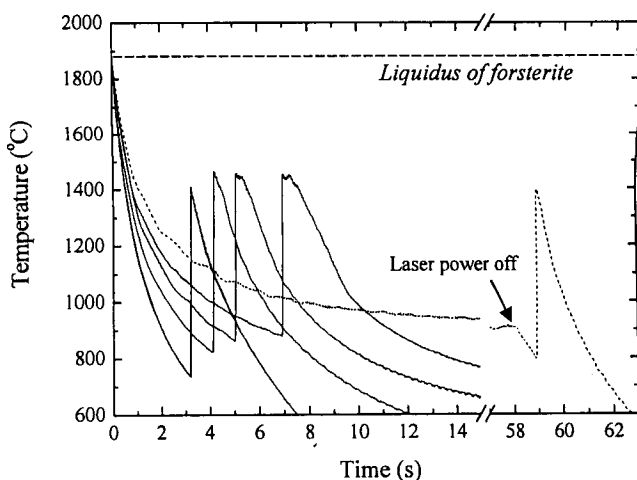


Figure 3.2 Typical cooling curves of the forsterite melts at various cooling rates.

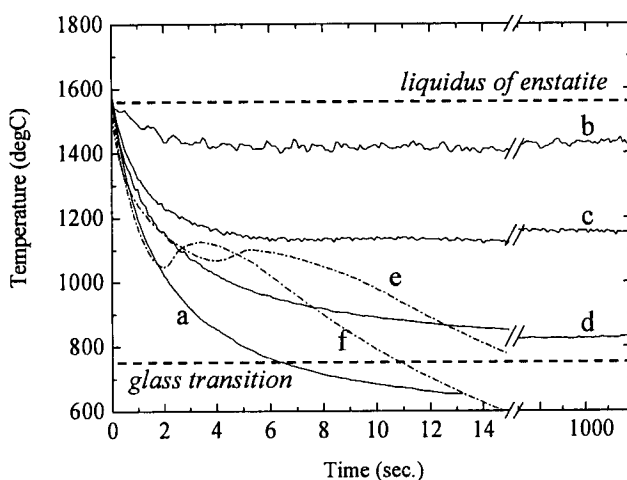


Figure 3.3 Typical cooling curves of enstatite. Solid lines (a-d) show levitation method and (e-f) dash-dotted lines show Pt wire method. Liquidus (1561 degC) and glass transition (750 degC) are indicated by broken lines.

そこで、次に非接触浮遊メルトからガラス化では無く結晶化を観察する目的で様々な過冷却度で試料の結晶化を待った。しかし、どの温度で長時間待っても ( $t = 1000$  s)核形成は確認できなかった (Figure 3.3b-d)。結局、実験的に非接触 enstatite メルトの核形成は確認できず、実験後の回収試料もガラス化していた。

### 3.3. メルト核形成温度の SiO<sub>2</sub> mol%依存性

Figure 3.4 は Mg 珪酸塩メルトをある過冷却度に 1 分間保持した時に核形成が起こるか否かをプロットしたものである。比較のために PtRh ワイヤで保持されたメルトが結晶化した温度を▲で示す。この図から、非接触メルトが核形成するのは 1000 K を超えるような非常に大きな過冷却度と、forsterite (SiO<sub>2</sub> mol% = 33.3%) のような SiO<sub>2</sub> mol% が少ないような条件でのみであるということがわかる。1 分間その温度に保持しても核形成が起こらなかった試料はその後レーザーの電源を切って冷却を行った。その際にも核形成は確認されず、回収試料はガラス化した。

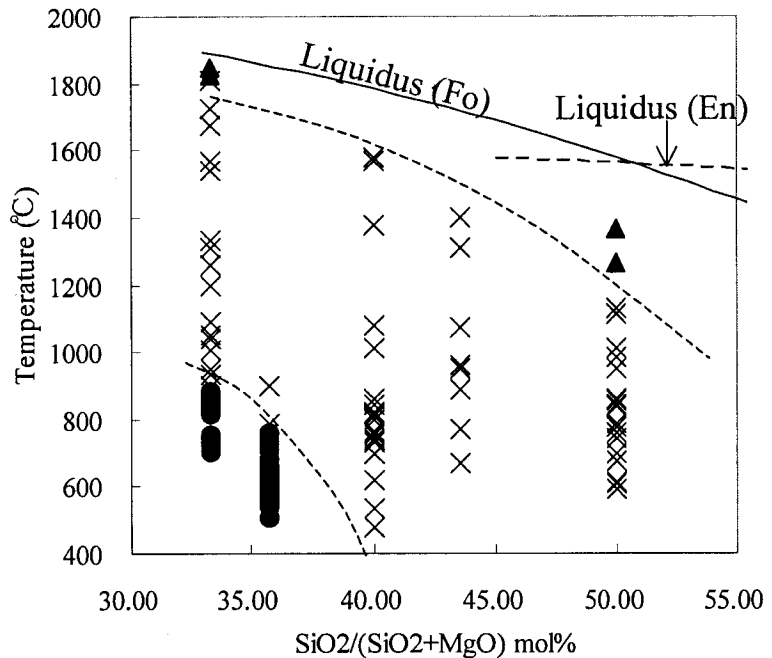


Figure 3.4 A relationship between nucleation and how to hold a sample droplet in MgO-SiO<sub>2</sub> system. Triangles were temperature of nucleation as sample droplet held by Pt wire. Crosses were temperature of sample kept stable without nucleation as supercooled levitated droplet over 1 minute. Circles were temperature of nucleation from levitated droplet.

かった試料はその後レーザーの電源を切って冷却を行った。その際にも核形成は確認されず、回収試料はガラス化した。

PtRh が接触しているメルトはどの SiO<sub>2</sub> mol% であっても核形成は起こり、ガラス化する現象は確認できなかった。結晶化の起こった過冷却度も非接触メルトに比べると非常に小さく 300 K 程度であった他、ほとんどの場合は目的の温度まで冷却する途中に核形成が起こってしまい、そのまま結晶化が進行した。

### 3.4. 結論

Mg 珪酸塩メルトを非接触浮遊保持と、PtRh ワイヤによる保持した場合の核形成温度を比較

したところ以下のことがわかった。

- (1) 非接触浮遊環境で結晶化するコンドリュールに対し、接触部があるような実験における接触部からの不均質核形成は顕著であり、その影響を無視することはできない。
- (2) 非接触浮遊環境において Mg 珪酸塩メルトの核形成は非常に困難であり、forsterite メルトは 1000 K 以上の過冷却度でようやく核形成が起こり、enstatite メルトに至ってはどの温度でも長時間核形成すら起こらなかった。
- (3) コンドリュール前駆体が完全溶融したながら、forsterite を除くコンドリュールメルトは全てガラス化してしまうことが予測される。これは観察事実に合わない。
- (4) コンドリュールメルトが核形成するには、コスミックダストなどとの接触といった核形成が促される現象が必要となる。

## 4. 微粒子付着によるコンドリュール形成

第3章より、天然に観察されるコンドリュールは結晶化しているにもかかわらずコンドリュールメルトはほぼガラス化してしまうことを示した。そこで、核形成を促進する原因としてコスミックダストとの衝突を考えた。コスミックダストはコンドリュール周辺に見られる細粒のリム (accretion rim) が存在していることからコンドリュール形成環境に多量に存在していたことがわかって (Grossman 1988)。

出発物質の作製方法は第2章で述べた方法と同様であり、それに付着させるための微粒子はガスジェット浮遊炉で作製した結晶から作製した。まず、結晶をエタノールで満たした乳鉢中で十分に細かくなるように破碎する。すると、様々な大きさの結晶微粒子がエタノール中に分散した状態になる。そこでメンブレンフィルター (7  $\mu\text{m}$ ) を通して粒径の大きいものを取り除く。最後に溶液を乾燥させてエタノールを蒸発させるとおよそ直径 5  $\mu\text{m}$  程度の結晶微粒子が得られる。この方法で forsterite 微粒子と orthoenstatite 微粒子を作製した。

非接触浮遊メルトの結晶化を促進させるための種付け操作は、微粒子をガスジェット浮遊炉に流す Ar ガス流に乗せて付着させる方法で行った。その具体的なイメージを Figure 4.1 に示した。

### 4.1. 微粒子付着による不均質核形成効果の測定

実験は、完全溶融させた珪酸塩メルトを過冷却状態にするため、レーザーの出力をある一定の値まで下げる。それにつれて温度も下がるので、温度が安定したところで微粒子を付着させた。その時の結晶化過程を CCD カメラで観察し、放射温度計で温度を測定した。

典型的な微粒子付着実験は以下の手順で行った。まずは浮遊させた結晶球を CO<sub>2</sub> レーザーで全溶融させてメルト球にし、その後レーザーの出力を下げ一定に保つことで浮遊メルトの温度を一定になるようにした。温度が落ち着いたら微粒子を付着させたタンタル棒をガスジェット浮遊

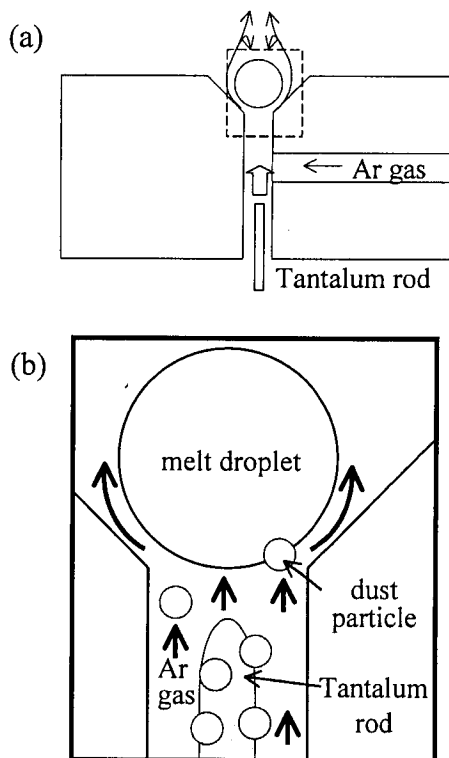


Figure 4.1 (a) Schematic diagram of apparatus used for crystallization from supercooled liquid by a gas-jet levitation technique. (b) Enlarged illustration of broken square of (a). Schema of seeding technique by dust particles.

炉ディフューザの下部から挿入して微粒子を付着させた。

典型的な実験による温度履歴を **Figure 4.2** に示す。それによると、大きく分けて4つのパターンの温度履歴が見られた (**Figure 4.2** の A-D)。それら4つのパターンを、A は「高温無反応」、B は「成長と融解」、C と D は「成長」、そしてさらに低温になると全く反応が起こらなかった。これを「低温無反応」と名づけた。これらのパターンは温度に依存して起こる現象であった。

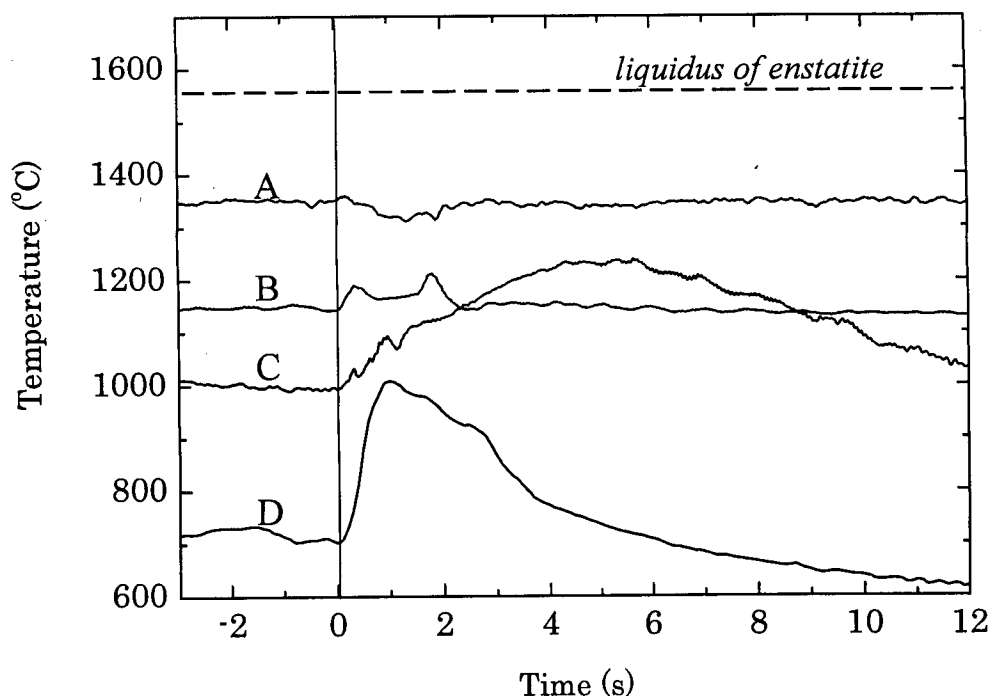


Figure 4.2 Typical temperature curves of levitated enstatite melts, as they collided with dust particles of enstatite at time = 0. A few minutes later, laser power turned off and specimens were solidified. Specimens of A and B were glasses and specimens of C and D were crystals.

「高温無反応」パターンとは、微粒子を付着させても結晶化の様子が観察されなかったことを示す。このパターンは融点近傍の比較的高温、すなわち低過冷却メルトで起こるのが特徴であった。**Figure 4.2A** を見ると、微粒子を付着させた瞬間に温度が少し下がっているが、これは微粒子を付着させることで浮遊メルト球が振動して位置が変わり、その結果放射温度計の軸からずれたためである。この時、CCD カメラで観察する限り結晶化は起こっておらず、そのままの温度で数分保持しても結晶化は始まらなかった。最後にレーザーの電源を切って冷却を行っても途中で結晶化による潜熱の上昇は見られず回収試料もガラス化していた。

「成長と融解」パターンとは CCD カメラで観察したところ、結晶が一度成長した後に融解する現象が見られたことを示す。温度が少しだけ上昇しているパターンが見えるのは、結晶が成長している部分が時々放射温度計の測定温度領域に入るからである。「成長と融解」パターンも「高温



無反応」パターンと同様に結晶化は最後まで見られず、回収試料はガラス化していた。

「成長」パターンとは **Figure 4.3a, b** で示したように結晶が成長し続け、最終的には浮遊メルト球全体が結晶化したことを示す。「成長」パターンについての結果は後述する。

「低温無反応」パターンは「高温無反応パターン」と同様に結晶化が起こらないことであるが、1000 K 近い非常に大きい過冷却度で起こるところが「高温無反応」パターンとは異なるところである。Richet and Bottinga (1986)によると、enstatite メルトのガラス転移点が 750°Cと報告されており、微粒子を付着させても無反応である理由は粘性係数が非常に増加して浮遊メルトはガラスに近い状態になっていたからだと考えられる。

以上のパターンより、「高温無反応」と「低温無反応」パターンを微粒子付着により不均質核形成が起こらなかったと定義し、「成長と溶解」、「成長」パターンを不均質核形成が起こったと定義した。それによると、不均質核形成はメルトの温度が 700-1200°C、過冷却度で言うと 360-860 K という限られた温度条件でのみ起こった。

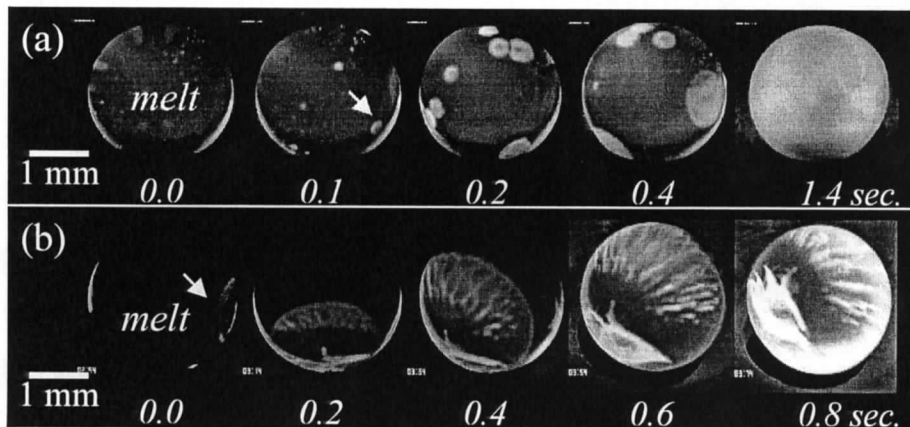


Figure 4.3 Time-sequence images of crystallization process of enstatite levitated melts at various supercooling: (a) multiple nucleation ( $\Delta T = 570$  K) and (b) single nucleation ( $\Delta T = 860$  K). Arrows show crystals.

#### 4.2. 晶化する結晶相の核形成温度依存性

不均質核形成が起こった時に生成した結晶球の結晶相を同定するためにラマン分光測定装置と透過型電子顕微鏡を用いた。

Enstatite メルトから結晶化した代表的な試料のラマンスペクトルによれば、温度に応じて forsterite と orthoenstatite の2相が確認された。その境界の過冷却度はおよそ 500 K で、それより低過冷却メルトから結晶化した試料は forsterite を示し、それより高過冷却メルトから結晶化した試料は orthoenstatite を示した。

透過型電子顕微鏡で試料の制限視野電子回折像を観察したところ、ラマン分光測定装置と同様に orthoenstatite のパターンが観察された (Figure 4.4a, b). しかし、 $\Delta T = 800$  K という高過冷却状態から結晶化した試料のある部分において  $\text{MgSiO}_3$  majorite のパターンが観察された (Figure 4.4c, d).  $\text{MgSiO}_3$  majorite は enstatite の高圧相にあたる (Figure 4.5).

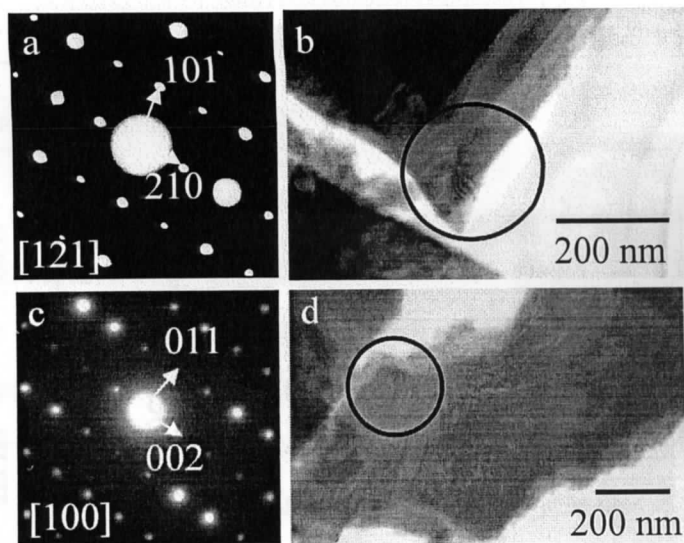


Figure 4.4 Selected area electron diffraction patterns of specimens. Image (a) shows orthoenstatite patterns at circle of (b), which was crystallized at  $\Delta T = 600$  K. (c) shows majorite patterns at circle of (d), which was crystallized at  $\Delta T = 800$  K. Majorite is high pressure phase of enstatite.

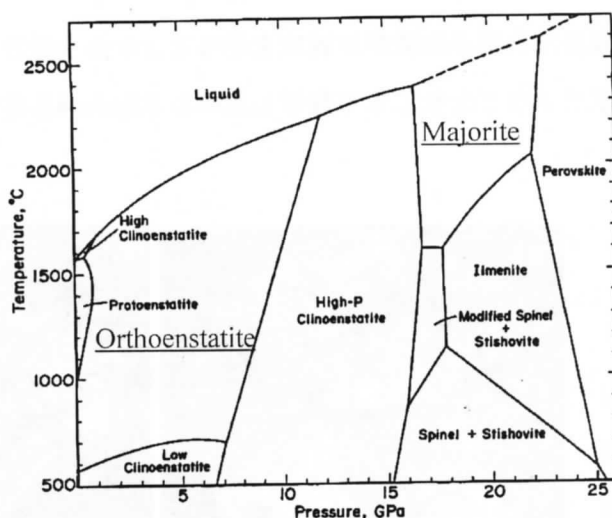


Figure 4.5 P-T diagram for  $\text{MgSiO}_3$  (Presnall, 1995)

#### 4.3. 結晶成長過程のその場観察

非接触浮遊 enstatite メルトに微粒子を付着させて不均質核形成が起こった場合、温度に依存していくつかの結晶成長過程を示した。それらは CCD カメラ映像で確認される固液界面形状によって「樹枝状」な界面と「フラット」な界面とに分けられる。

「樹枝状」界面はに見られるような結晶形態で成長しているものである。この場合は成長後に溶解しているが、溶解せずにそのまま成長していく場合の方が多い。「樹枝状」界面は不均質核形

成する温度条件の中では高めの温度で確認される。

一方、「フラット」な界面とは固液界面がほぼ円を描くような成長形態を示し、**Figure 4.3a** のような複数の円が成長する場合もあれば **Figure 4.3b** のように1つの結晶が円状に成長する場合もある。この結晶の数は温度に依存しており、高温であれば数十個の結晶が成長しており、低温になるにつれて結晶の数は少なくなった。特に **Figure 4.3b** のように結晶の数が数個未満のものを「フラット」界面ではあるが特に「放射状」と呼ぶことにする。これは後述する結晶組織が放射状を示すことからつけた名前である。

本項での様々な結晶化パターンなどをまとめて整理したのが **Figure 4.6** である。

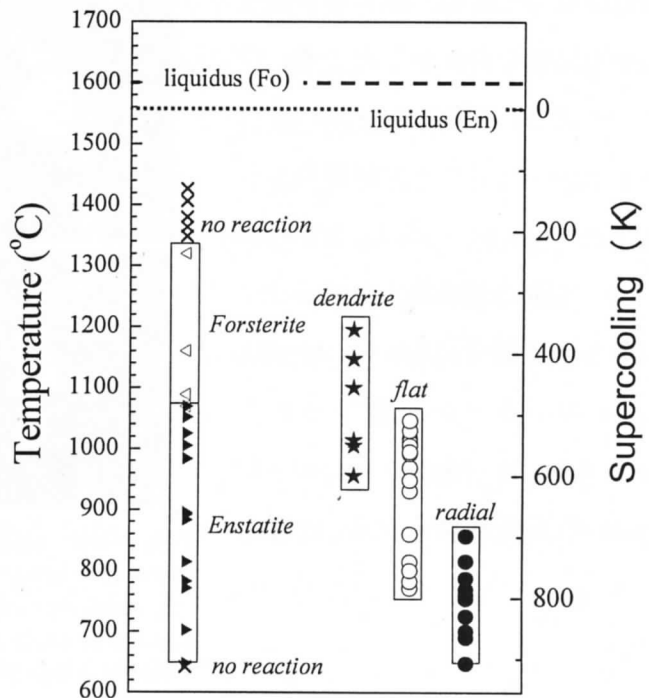


Figure 4.6 Crystal phases and textures crystallized from levitated enstatite melt vs. temperature.

#### 4.4. 結晶成長組織の観察

CCD カメラで撮影したメルト表面では様々な結晶組織が観察されたが、同様の傾向が実験後試料薄片の偏光顕微鏡観察によっても確認された。**Figure 4.7** は「フラット」な界面が見られ、ortho-enstatite が結晶化している試料を低過冷却度条件から高過冷却度条件へと順番に並べたものである。前述した定義では **Figure 4.7b, c** が

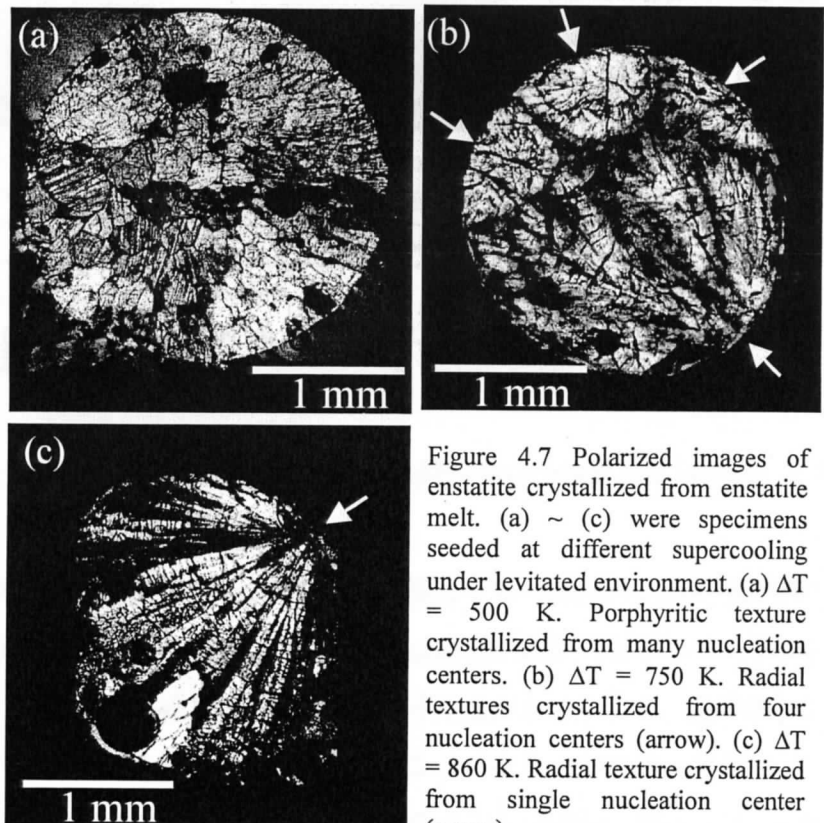


Figure 4.7 Polarized images of enstatite crystallized from enstatite melt. (a) ~ (c) were specimens seeded at different supercooling under levitated environment. (a)  $\Delta T = 500$  K. Porphyritic texture crystallized from many nucleation centers. (b)  $\Delta T = 750$  K. Radial textures crystallized from four nucleation centers (arrow). (c)  $\Delta T = 860$  K. Radial texture crystallized from single nucleation center (arrow).

「放射状」に当てはまる。

**Figure 4.7a** はメルト表面で複数の結晶が成長していた試料で、偏光顕微鏡像からは数十個の結晶が、各々方位が異なる状態で成っていることがわかる。このような結晶組織は天然の斑晶質コンドリュールと呼ばれる結晶組織に似ている。**Figure 4.7b** はメルト表面でいくつかの結晶が成長していた試料で、偏光顕微鏡像からは試料表面に4つの成長中心が確認された。各々からは放射状に結晶組織が伸びていた。**Figure 4.7c** は成長中心は1つであり、そこから放射状に結晶組織が伸びている。これは典型的な天然の放射状輝石コンドリュール結晶組織を示している。

#### 4.5. 結晶成長速度の測定

メルト表面を成長する速度を測定したところ、**Figure 4.8** が得られた。それによれば、forsterite メルト中の結晶成長速度は enstatite メルトのそれに比べて1~2桁速く、天然の pyroxene メルトは1桁遅い。この理由としては粘性係数の違いが考えられる。しかしながら、最も粘性係数が高いと思われる天然 pyroxene コンドリュールメルトにおいても数十秒間内には直径数 mm 程度のコンドリュールが成長することを示している。このことは平衡凝固による数十分や数時間かけてコンドリュールが形成するという従来の考えより圧倒的に速いことになる。

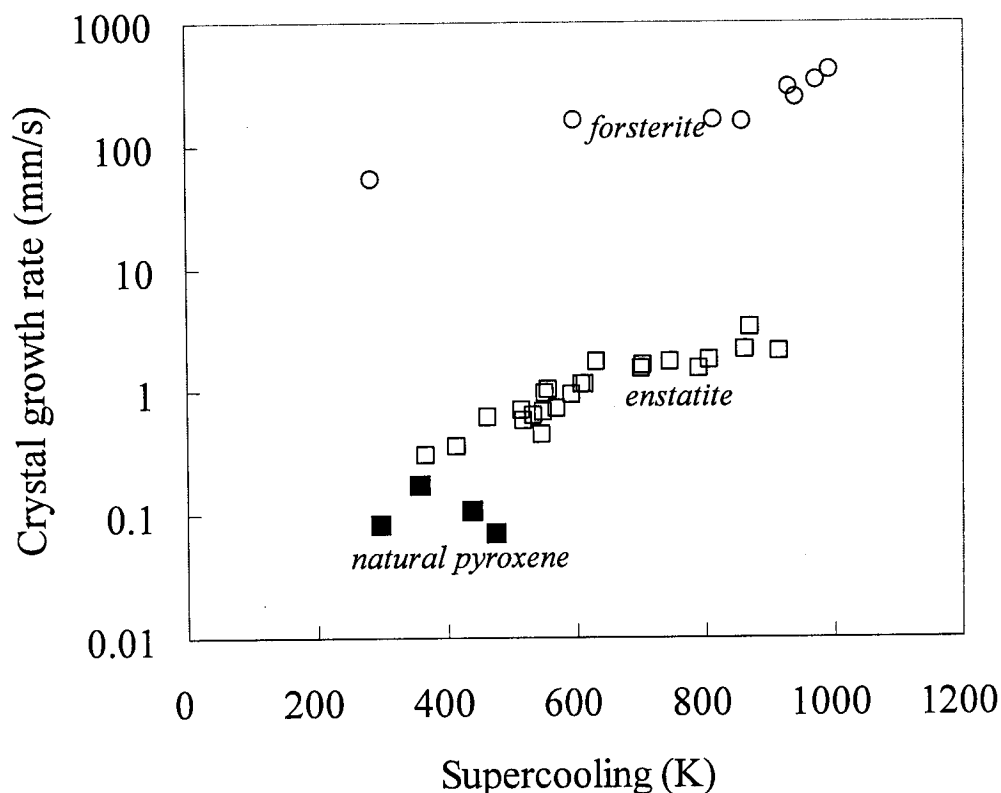


Figure 4.8 Crystal growth speed vs. supercooling.

#### 4.6. 結晶成長シミュレーションとの比較

BO コンドリユールに見られる特異なリム構造の形成条件を求めるため、フェーズフィールドモデルを用いた結晶成長シミュレーションが行われている (Yokoyama et al.). その実験結果を示したのが **Figure 4.9** である. このシミュレーションはメルト表面 (左端) に核が与えられた時にどのような結晶成長パターンを示すかを求めたものである. 図中  $S$  は無次元化された過冷却度  $\frac{\Delta T}{C_p}$  を示し, hypercooling limit を用いて書き直すと  $\frac{\Delta T}{\Delta T_{hyp}}$  となる.  $u_0$  は無次元化された初期温度  $\frac{T_0 - T_m}{\Delta T}$  を示し,  $u_0 = 0$  の時に融点となる. 図中の上半円は温度場を示し, 下半円は形成される内部構造パターンを示している.

傾向としては  $u_0$  が 0 以上の時, すなわち融点以上であることがリム構

造形成の必要条件となる. さらに,  $S$  が高い時に典型的なリムが形成する傾向が見られた. このことは, 融点以上に加熱されたメルトから過冷却度が高い場合にリムが形成しやすいということである.

Barred olivine コンドリユールにリム構造が見られるが, radial pyroxene コンドリユールにリム構造が見られない理由として, forsterite と enstatite とで比べれば結晶成長速度がおおよそ 100 倍異なることがわかる. すなわち, forsterite に対して enstatite は成長速度が遅すぎるために  $S$  が小さいことと同じ効果を生んでしまい, リム構造が形成しないと考えられる.

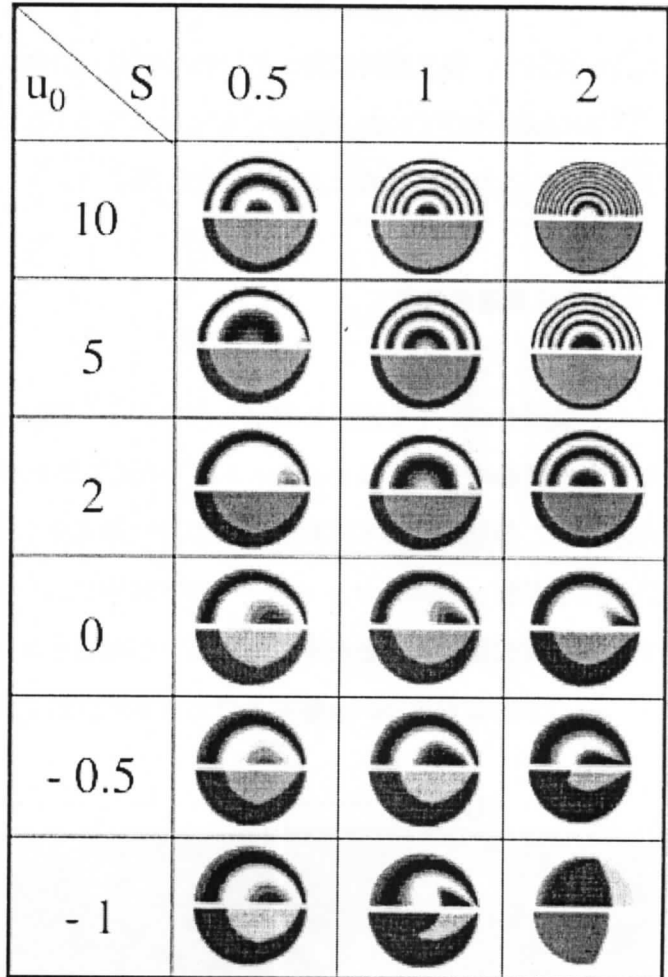


Figure 4.9 Solidification process inside of a circular melt using a phase field model.  $S$  shows a dimensionless supercooling and  $u_0$  shows a initial temperature (Yokoyama et al.).

#### 4.7. Hypercooling limit と結晶組織の関係

コンドリュールはメルト成長であり、過冷却度が大きくなるにつれて班晶→骸晶→樹枝状と形態を変化させていく。このような変化は固液界面で発生する潜熱の排除過程が律速であることに起因する。それではさらに過冷却度を大きくしていくとどのような形態になっていくのだろうか。このことに関して Trivedi と Kurz は理論を元に金属結晶についてまとめている (Trivedi and Kurz, 1985, 1994)。それによれば、結晶形態は過冷却度が大きくなるにつれて Planar→Cellular→Dendritic と界面の不安定性が増す方向に変化していく。ところがさらに過冷却度を大きくすると再度 Cellular 組織になり Planar になっていき界面の不安定性が無くなっていくと結論づけられている。それでは、実際に Dendritic な組織からさらに過冷却度を増したときに界面の不安定性が消えていくのはどの程度の過冷却度なのだろうか。この目安となるのが Hypercooling limit という値である。

Hypercooling limit ( $\Delta T_{hyp}$ ) は Glicksman and Schaefer (1966)によって以下のように定義された。

$$\Delta T_{hyp} = \frac{\Delta H_f}{C_p} \quad (4.1)$$

ここで  $\Delta H_f$  は融解エンタルピー、 $C_p$  は液相の比熱である。この定義からわかるように、 $\Delta T_{hyp}$  はある単位体積の液相が固相に変化した場合、発生する潜熱によって温度が最大何度上昇するかを示している（最大値をとるのは断熱系の時）。

このことは、少なくとも hypercooling 状態 ( $\Delta T > \Delta T_{hyp}$ ) からの結晶化では、固液海面温度が融点まで上昇しないことを示している。メルト成長における結晶成長速度の律速は固液界面で発生する結晶化潜熱の排除過程であるから、hypercooled メルトからの結晶化においてはそもそも熱を逃がす必要が無いことになる。よって、理論的には過冷却度が大きくなるに従い結晶組織の過冷却度依存性の逆転が起こるわけである。そのような結晶成長組織の過冷却度依存性については、フェーズフィールドモデルを用いた結晶組織の形成シミュレーションによっても確認されている (Kobayashi, 1993; Bates et al., 1997)

ところが、この hypercooling limit に関する実験的研究は困難である。なぜなら、大部分の物質、例えば金属や酸化物などの  $\Delta T_{hyp}$  を計算すると数百から数千 K といった非常に大きな値になる。よって、そもそも hypercooled メルトの温度が絶対零度以下になってしまう物質は理論上 hypercooled メルトからの結晶化はありえないし、理論上可能である場合もこのような超高過冷却

状態からの結晶化は起こることは少ない。

よって hypercooling limit に関する実験的研究は少なく, Glicksman and Schaefer (1966)は潜熱の小さい白燐を選んで実験を行っている。しかし, 近年様々な手法により無容器の浮遊実験が行われるようになると非常に大きな過冷却を安定して作り出すことが可能となると共に, 特に金属などの分野では新材料の研究等の目的で非常に大きな過冷却からの結晶化という研究がなされるようになってきている (Ludwig, 1996; Nagashio and Kuribayashi, 2001; Han et al., 2001; Liu et al., 2001)。

コンドリュールに含まれる代表的な珪酸塩の hypercooling limit を計算すると, forsterite メルトの場合,  $\Delta H_f=114$  KJ/mol (Richet and Bottinga, 1986),  $C_p=268$  Jmol<sup>-1</sup>K<sup>-1</sup> (Ghiorso and Carmichael, 1980) と与えられているので 425 K になり, enstatite メルトの場合,  $\Delta H_f=73.2\pm 6$  KJ/mol (Richet and Bottinga, 1986),  $C_p=144.44$  Jmol<sup>-1</sup>K<sup>-1</sup> (Barin et al., 1989) と与えられているので 459-541 K となる。

今回の実験結果と照らし合わせると, フラットな界面の結晶が得られた条件は hypercooled メルトに相当する。よって, 一般には溶け残りから平衡凝固で形成すると考えられている porphyritic コンドリュール組織は平衡からはるかに離れた hypercooled メルトからの結晶化によって作り出されているケースもありえることがわかる。このことは, ほとんどのコンドリュールが不完全溶融から形成したと考えられている現状に対し大きなインパクトを与える。

なぜならコンドリュール形成イベントで不完全溶融メルトを形成するにはほどよい加熱現象が必要であり, これは天然現象としては困難である。そのため, 例えば Miura et al. (2002)はコンドリュールが加熱された時の蒸発の効果を考えることで温度が上がり過ぎないというシミュレーション結果を示している。さらに, porphyritic コンドリュールの中に見られた溶け残り物質と思われるものに関しても, 外来物質が種となって成長した可能性も含めて再検討が必要であると思われる。

#### 4.8. 結論

浮遊した enstatite メルトに微粒子を付着させて核形成挙動を観察したところ, 以下のことがわかった。

- (1) 非接触浮遊メルトに微粒子を付着させても不均質核形成が起こるとは限らない。不均質核形成が起こるのはメルトの過冷却度が 220-900 K という限られた温度領域のみであった。
- (2) enstatite メルトから準安定相である enstatite が核形成するには過冷却度が 500 K 以上必要であった。この値は, enstatite メルトに対する安定相である forsterite 結晶の界面張力, 準安定相である enstatite 結晶の界面張力の比で決定される。

- (3)  $\Delta T = 800 \text{ K}$  という超高過冷却メルトからは高圧鉱物である  $\text{MgSiO}_3$  majorite が発見された。
- (4) 天然に見られる放射状組織が形成するためには、 $700\text{--}900 \text{ K}$  という超高過冷却メルト (hypercooled メルト) に微粒子が付着して核形成することが必要である。
- (5) 珪酸塩メルトからの結晶成長速度は粘性係数に強い影響を受ける。そのため、 $\text{SiO}_2$  mol% が多くなり、メルトの温度が低温になるにつれ結晶成長速度は低下する。
- (6) コンドリュールの中でも粘性係数が大きい pyroxene コンドリュールメルト中での結晶成長速度を測定したところおよそ  $0.1 \text{ mm/s}$  のオーダーであり、直径  $1 \text{ mm}$  程度のコンドリュールは  $10$  秒程度で結晶化が完了することがわかった。



## 5. 急冷によるコンドリュール急速形成モデル

### 5.1. コンドリュール結晶化条件

Jones et al. (2000)はコンドリュールの熱履歴の重要な要素として、コンドリュールメルト周辺の環境温度、コンドリュールメルトの最高到達温度、溶融時間、そして冷却速度をあげている。これら各々の値を決める上でコンドリュールの再現実験は重要な役割を果たしてきた。しかしながら、従来のコンドリュール再現実験において試料の保持に使用されていた Pt ワイヤが結晶化に与える影響は非常に大きく、不均質核形成を促進してしまうことを本研究は示した。そこで、過去の研究結果の中でどの点が問題であるかを再検証しながら、本研究結果によってどのようなコンドリュール形成モデルが構築できるかを試みる必要がある。

まずは、従来のコンドリュール再現実験で無視されてきた結晶化温度について議論する。コンドリュールメルトがコスミックダストと衝突することで核形成が起こり結晶化するのであれば、結晶化温度 ( $T_c$ )すなわち衝突温度は、コンドリュールメルトの冷却速度 ( $R_c$ )とコスミックダストとの平均衝突時間 ( $C_r$ )で決定される。その関係を時間と過冷却度を元に示したのが **Figure 5.1** である。

ある冷却速度  $R_c$  でコンドリュールメルトが冷却される場合、コスミックダストの衝突によって結晶化するためには少なくとも過冷却度  $\Delta T > 0$  という条件があげられる。ただし、低過冷却領域では微粒子を付着させても結晶化が起こらない現象が実験で確認されたので、その臨界過冷却度条件を  $\Delta T_n$  とすると、温度  $T_m - \Delta T_n$  までは微粒子が付着しても結晶化は起こらないことになる。その後、平均衝突時間  $C_r$  後にコスミックダストは衝突するので式(5.1)が成り立つ。

$$\Delta T_c - \Delta T_n = R_c \cdot C_r \quad (5.1)$$

このようにして結晶化温度 ( $T_c$ )は、コンドリュールメルトの冷却速度 ( $R_c$ )とコスミックダストとの平均衝突時間 ( $C_r$ )で決定される。

コンドリュールの結晶化温度  $T_c$  は式(5.1)によって与えられたが、コスミックダストが衝突したとしてもある限られた温度でしか結晶化は起こらない。まず、結晶化温度  $T_c$  がガラス転移点  $\Delta T_g$  を下回った場合には結晶化が起こらず天然には存在しないガラスコンドリュールになってしまう。よって、コンドリュール結晶化条件として式(5.2)があげられる。

$$\Delta T_g - \Delta T_n > R_c \cdot C_r \quad (5.2)$$

例えば enstatite の場合だと  $\Delta T_n = 300$  K,  $\Delta T_g = 800$  K であるのでコンドリュール結晶化条件式(5.3)を求めることができる。この条件より、コスミックダスト密度が薄いところで余りに速くコンドリュールメルトが冷却されるとコンドリュールはガラス化してしまうことがわかる。

$$500 \text{ K} > R_c \cdot C_r \quad (5.3)$$

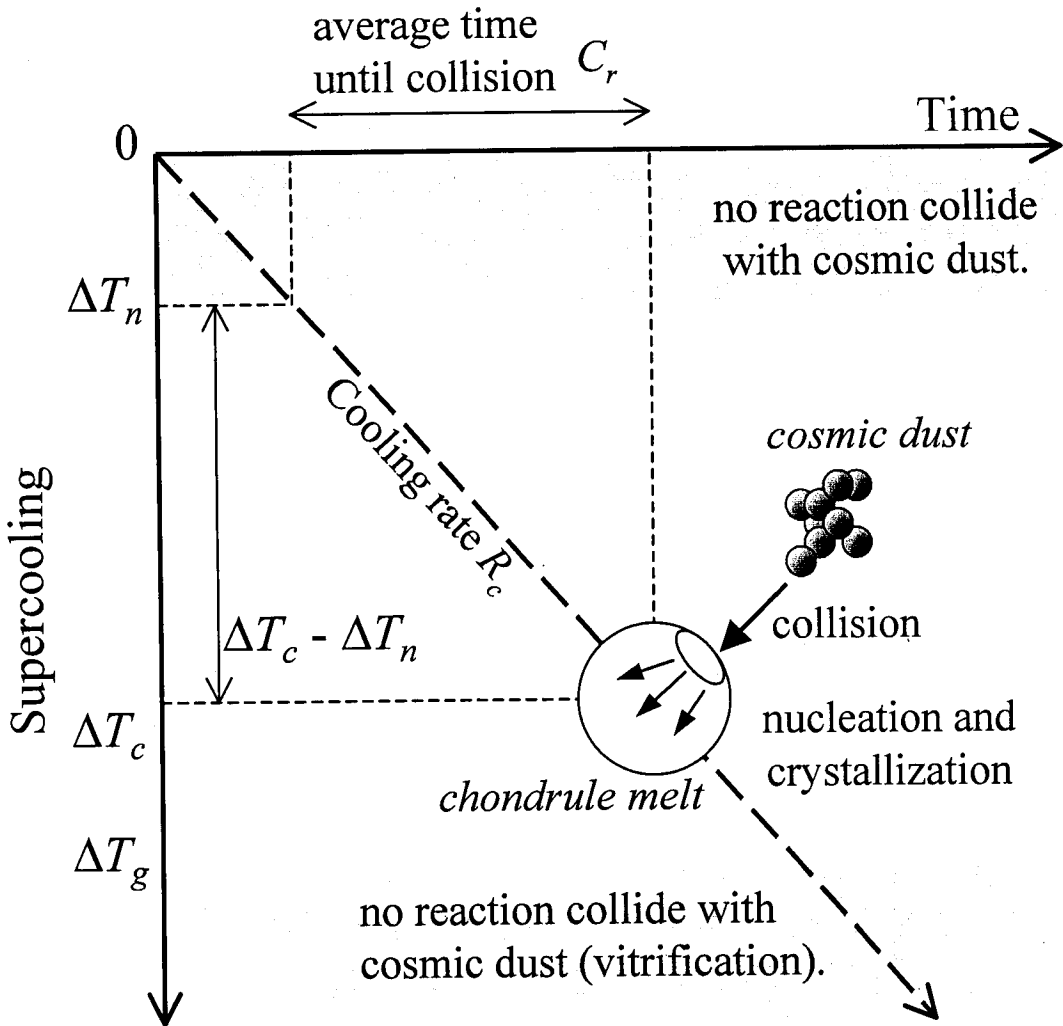


Figure 5.1 Image of the chondrule formation by collision with cosmic dusts.

## 5.2. Radial enstatite コンドリュール形成条件

Radial pyroxene コンドリュールに見られる放射状組織は enstatite メルトの過冷却度が  $600\text{ K} < \Delta T_c < 800\text{ K}$  という条件において確認されたので radial enstatite 形成条件式(5.4)が求められる.

$$300\text{ K} < R_c \cdot C_r < 500\text{ K} \quad (5.4)$$

この条件式を元にしたのが **Figure 5.2** である.

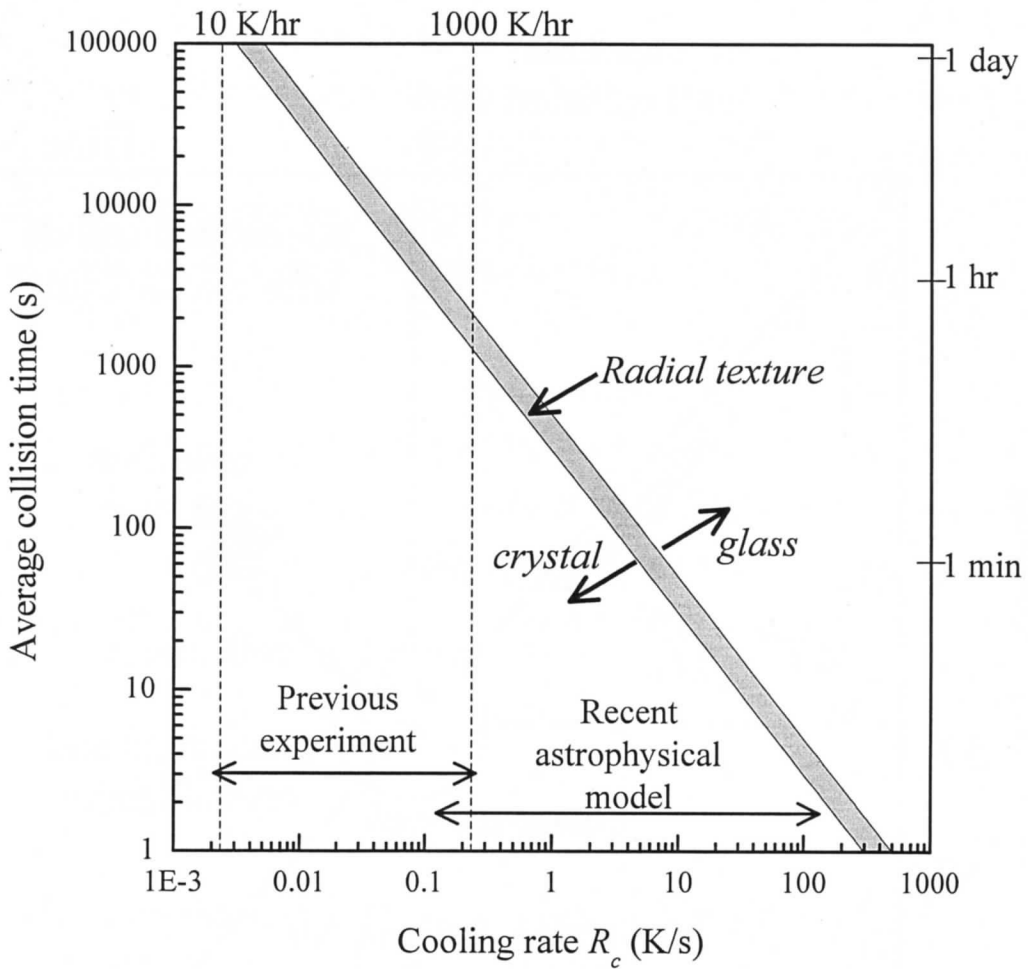


Figure 5.2 Requirement of formation of radial enstatite chondrule.

### 5.3. コンドリュールメルト冷却速度

過去の再現実験により求められた 10-1000 K/hr という冷却速度 (Lofgren, 1996) の場合, radial enstatite 組織を作るためには 1 時間から 1 日に 1 個コスミックダストが衝突することが必要になる。しかし, コンドリュール形成環境において, コンドリュールの前駆物質であるコスミックダストがそのような大変希薄な環境であったのかは非常に疑問である。加えて問題なのが, コンドリュールが非常に長時間メルトとして存在してしまうことである。コンドリュールには硫黄, カリウムやナトリウムなどの揮発性成分が含まれており, これらが残存するにはおよそせいぜい数時間程度のメルト存在時間しか許されない (Tsuchiyama 1981b)。

そもそも, 過去のコンドリュール再現実験において冷却速度の上限である 1000 K/hr という値は, それ以上の冷却速度で冷却すると結晶では無くガラスが形成してしまうことが根拠となっている (e.g., Lofgren 1996)。しかし, それらの過去の研究では試料を保持するために Pt ワイヤーを使っていたために不均質核形成の影響が議論できていない。その不均質核形成の影響を除外し, 非接触浮遊法によって行った本研究によれば, 冷却速度や温度にかかわらず天然の pyroxene コンドリュールメルトは核形成せず, 常にガラス化してしまうはずである (第 3 章)。よって, 過去のコンドリュール再現実験から示唆される 1000 K/hr という最大冷却速度はそもそも根拠が無いことになる。これらのことを総合して考えると, 従来のコンドリュール再現実験で提唱された 10-1000 K/hr といった冷却速度は余りにも遅すぎて非現実的であることがわかる。

そのような非常に遅い冷却速度に対し, 近年の天体物理学的なコンドリュール形成モデルでは K/s から数百 K/s といった放射冷却に律速されるような非常に速い冷却速度が提唱されている (Liffman and Brown, 1996; Horanyi and Robertson, 1996; Iida et al., 2001; Miura et al., 2002)。例えば 1 K/s 以上の冷却速度であれば結晶化が起こるまで 1 分程度であるのでメルト存在時間も問題は無い。

#### 5.4. コスミックダストとの衝突頻度

コンドリュールメルトとコスミックダストとの平均衝突頻度  $C_r$  は、コンドリュールメルトとコスミックダストとの相対速度  $V$ 、コスミックダスト密度  $d$  とコンドリュール半径  $r$  に依存すると考えられる。よって、Figure 5.3 を元に計算すると式(5.5)が得られる。

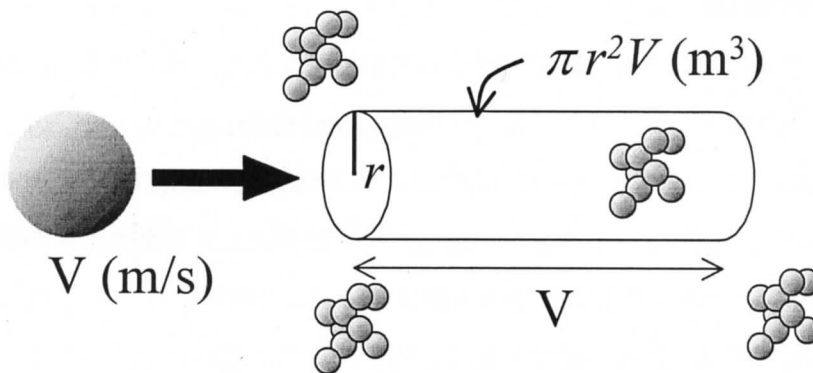


Figure 5.3 Collision between chondrule melt and cosmic dusts.

$$C_r = \frac{1}{\pi r^2 V d}$$

コンドリュール直径はおよそ 0.1-1.0 mm なので半径  $r$  は決まるが、コンドリュールメルトとコスミックダストとの相対速度  $V$ 、コスミックダスト密度  $d$  を決めなくてはならない。相対速度  $V$  はコンドリュールモデルに依存して値が求められているため、代表的なコンドリュール形成モデルによるダスト密度  $d$  と平均衝突頻度  $C_r$  を求めた (Table 5.1)。

Table 5.1 Experimental conditions in Pt rod experiments

model	$R_c$ (K/s)	$V$ (km/s)	$r$ (mm)	$d$ (/m <sup>3</sup> )	$C_r$	Reference
shock wave	100	5.0	0.1	640 – 850	7.5 sec	Iida et al. (2001)
lightning	20	5.0	0.2	32 – 42	38 sec	Horanyi and Robertson (1996)
shock wave	9.7	10	0.1	31 – 41	77 sec	Miura et al. (2002)
protostellar jet	8.0	0.1	1.0	25 – 34	94 sec	Liffman and Brown (1996)
shock wave	0.3	10	10	$96 - 127 \times 10^{-6}$	40 min	Iida et al. (2001)

それによると、今回最もダスト密度が多く見積もられたのは Iida et al. (2001) の例であるが、それでも 640–850 個/m<sup>3</sup> という値はコンドリュール形成環境として薄すぎる密度である。よってさらに速い急冷過程や遅い相対速度  $V$  が示唆されるが、正確な計算を行うにはやはり原始太陽系星雲内でのダスト密度をおおまかにでも見積もる必要がある。

ただし、この時の  $C_r$  は 7.5 秒と非常に短い間隔であるのでそれにも注意が必要である。なぜならこの時間はコンドリュールの結晶化が完了するまでの時間と同程度のオーダーだからである。天然の pyroxene コンドリュールの結晶成長速度は 0.1 mm/s のオーダーであるからコンドリュール全体が結晶化するまでに最大 10 秒程度かかることになる。このことはコスミックダストがより低過冷却条件でぶつかっても、成長しながら急冷されるうちにメルトが高過冷却状態になってしまいう可能性を示す。このことはどんなに遅い冷却速度だとしても、粘性が高く結晶成長速度が遅いコンドリュールが完全に結晶化する 10 秒間内に hypercooled メルトである 500 K の温度下降が必要となり、50 K/s 以上の冷却速度が必要であることが示唆される。

このような、急冷 (100 K/s オーダー) かつ急速 (10 秒間内) にコンドリュールが形成するという考えは今までに無かったコンドリュール形成過程であり、それを吟味することで今まで明らかにならなかったコンドリュール形成モデルの決定に繋がると考えられる。

## Summary

コンドリュール形成過程を議論するために、コンドリュール結晶組織再現のための非接触浮遊メルトからの結晶化実験を行った。それらにより以下のことが結論づけられる。

- (1) 完全溶融したコンドリュールメルトのほとんどは冷却に伴いガラス化してしまう。天然に見られる結晶化したコンドリュールを形成するためにはコスミックダストとの衝突が必須である。
- (2) コスミックダストとの衝突温度は hypercooled melt と呼ばれる超高過冷却状態 ( $\Delta T > 500 \text{ K}$ ) の必要がある。そのためコンドリュールの結晶化過程は非常に高速であり、遅くとも 10 秒程度で完了する。
- (3) 本研究で決定されたコンドリュール形成温度は、コンドリュールメルトの冷却速度とコスミックダストとの衝突頻度で決定されるため、コンドリュール形成モデルの決定に重要な役割を果たす。現在の見積もりの結果、少なくとも放射冷却律速のような急冷が必要である。

## 引用文献

- [1] Bates P.W., Fife P.C., Gardner R.A. and Jones C.K.R.T. (1997) Phase field models for hypercooled solidification, *Physica D*, 104, 1-31
- [2] Bell K.R., Cassen P.M., Wassen J.T. and Woolum D.S. (2000) The FU orionis phenomenon and solar nebula material, in *Protostars and Planets IV*, 897-926
- [3] Boss P.A. and Graham J.A. (1993) Clumpy disk accretion and chondrule formation, *Icarus*, 106, 168-178
- [4] Bowen N.L. and Andersen O. (1914) The Binary System MgO-SiO<sub>2</sub>, *Amer. J. Sci.* 4th ser., 37, 487-500
- [5] Brearley A.J. and Jones R.H. (1999) Chondritic meteorites, in *Reviews in mineralogy volume 36; Planetary materials*, pp. (3-)1-398
- [6] Clayton R.N., Onuma N., Grossman L. and Mayeda T.K. (1977) Distribution of the pre-solar component in Allende and other carbonaceous chondrites, *Earth and Planetary Science Letters*, 34, 209-224
- [7] Connolly Jr. H.C. and Love S.G. (1998) The formation of chondrule: Petrologic tests of the shock wave model, *Science*, 280, 62-67
- [8] Feigelson E.D. and T. Montmerle (1999) High-energy processes in young stellar objects, *Annu. Rev. Astron. Astrophys.*, 37, 363-408
- [9] Genge M.J. (2000) Chondrule formation by the ablation of small planetesimals, *Meteoritics & Planetary Science*, 35, 1143-1150
- [10] Glicksman M.E. and Schaefer R.J. (1967) Investigation of solid/liquid interface temperatures via isenthalpic solidification, *Journal of crystal growth*, 1, 297-310
- [11] Grossman J.N., Rubin A.E., Nagahara H. and King E.A. (1988a) Properties of chondrules, in *Meteorites and the early solar system*, pp. 619-659
- [12] Grossman J.N. (1988b) Formation of chondrules, in *Meteorites and the early solar system*, pp. 680-696
- [13] Han X.J., Yang C., Wei B., Chen M. and Guo Z.Y. (2001) Rapid solidification of highly undercooled Ni-Cu alloys, *Materials Science and Engineering A*, 307, 35-41
- [14] Hewins R.H. and Herzberg C.T. (1996) Nebular turbulence, chondrule formation, and the composition of the earth, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 144, 1-7



- [15] Hood L.L. and Horanyi M. (1993) The nebular shock wave model for chondrule formation: One-dimensional Calculations, *Icarus*, 106, 179-189
- [16] Horanyi M. and Robertson S. (1996) Chondrule formation in lightning discharges: Status of theory and experiments, in *Chondrules and the Protoplanetary Disk*, pp. 303-310
- [17] Iida A., T. Nakamoto, H. Susa and Y. Nakagawa (2001) A Shock Heating Model for Chondrule Formation in a Protoplanetary Disk, *Icarus*, 153, 430-450
- [18] Jones R.H., Lee T., Connolly Jr. H.C., Love S.G. and Shang H. (2000) Formation of chondrules and CAIs: Theory vs. observation, in *Protostars and Planets IV*, 927-962
- [19] Kobayashi R. (1993) Modeling and numerical simulations of dendritic crystal growth, *Physica D*, 63, 410-423
- [20] Krot A.N. and Rubin A.E. (1994) Glass-rich chondrules in ordinary chondrites, *Meteoritical Society*, 29, 697-707
- [21] Liu X.Y., Tsukamoto K. and Sorai M. (2000) New kinetics of  $\text{CaCO}_3$  nucleation and microgravity effect, *Langmuir*, 16, 5499-5502
- [22] Liu X.Y. and Tsukamoto K. (2002) The effect of microgravity on nucleation kinetics, *J. Jpn. Soc. Microgravity Appl.*, 19, 14-18
- [23] Liu Y.C., Yang G.C., Guo X.F., Yang J.H., Xu D.S. and Zhou Y.H. (2001) Microstructure and mechanical properties of the hypercooled Ti50Al50 alloy, *Materials Research Bulletin*, 36, 963-969
- [24] Lofgren G. and Russell W.J. (1986) Dynamic crystallization of chondrule melts of porphyritic and radial pyroxene composition, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 50, 1715-1726
- [25] Lofgren G. (1989) Dynamic crystallization of chondrule melts of porphyritic olivine composition: Textures experimental and natural, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 53, 461-470
- [26] Lofgren G. and Lanier A.B. (1990) Dynamic crystallization study of barred olivine chondrules, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 54, 3537-3551
- [27] Lofgren G.E. (1996) A dynamic crystallization model for chondrule melts, in *Chondrules and the Protoplanetary Disk*, pp. 187-196
- [28] Ludwig A. (1996) Hypercooling of an organic alloy melt, *Scripta Materialia*, 34, 579-584
- [29] Miura H., Nakamoto T. and Susa H. (2002) A Shock-Wave Heating Model for Chondrule Formation: Effects of Evaporation and Gas Flows on Silicate Particles, *Icarus*, 160, 258-270

- [30] Mostefaoui S., Kita N. T., Togashi S., Tachibana S., Nagahara H., Morishita Y. (2002) relative formation ages of ferromagnesian chondrules inferred from their initial aluminum-26/aluminum-27 ratios, *Meteoritics & Planetary Science*, 37, 421-438
- [31] Nagahara H. (1981) Evidence for secondary origin of chondrules, *Nature*, 292, 135-136
- [32] Nagashio K. and Kuribayashi K. (2001) Rapid solidification of Y<sub>3</sub>Al<sub>5</sub>O<sub>12</sub> Garnet from hypercooled melt, *Acta materialia*, 49, 1947-1955
- [33] Norton O.R. (2002) Primitive meteorites: the chondrites, in *The Cambridge encyclopedia of meteorites*, pp. 79-100
- [34] Ott U. (2001) Presolar grains in meteorites: an overview and some implications, *Planetary and Space Science*, 49, 763-767
- [35] Paradis P.F., Babin F. and Gagne J.M. (1996) Study of the aerodynamic trap for containerless laser materials processing in microgravity, *Rev. Sci. Instrum.*, 67, 262-270
- [36] Richet P. and Bottinga Y. (1986) Thermochemical properties of silicate glasses and liquids: A review, *Reviews of Geophysics*, 24, 1-25
- [37] Presnall D.C. (1995) Phase diagrams of Earth-forming minerals, in *Mineral Physics & Crystallography: a handbook of physical constants*, pp. 248-268
- [38] Ruzmaikina T.V. and Ip W.H. (1994) Chondrule formation in radiative shock, *Icarus*, 112, 430-447
- [39] Shu F.H., Shang H. and Lee T. (1996) Toward an astrophysical theory of chondrites, *Science*, 271, 1545-1552
- [40] Shu F.H., Shang H., Glassgold A.E. and Lee T. (1997) X-rays and Fluctuating x-winds from protostars, *Science*, 277, 1475-1479
- [41] Tangeman J.A., Phillips B.L., Navrotsky A., Weber J.K.R., Hixson A.D. and Key T.S. (2001) Vitreous forsterite (Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub>): synthesis, structure and thermochemistry, *Geophys. Res. Lett.*, 28, 2517-2520
- [42] Trivedi R. and Kurz W. (1985) Morphological stability of a planar interface under rapid solidification conditions, *Acta metall. Mater.*, 34, 1663-1670
- [43] Trivedi R. and Kurz W. (1994) Solidification microstructures: A conceptual approach, *Acta metall. Mater.*, 42, 15-23
- [44] Tsuchiyama A., Nagahara H., Kushiro I. (1980) Experimental reproduction of textures of chondrules, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 48, 155-165

- [45] Tsuchiyama A., Nagahara H. (1981a) Effects of precooling thermal history and cooling rate on the texture of chondrules: A preliminary report, *Mem. Nalt. Inst. Polar Res., Special Issue 20*, 175-192
- [46] Tsuchiyama, A., H. Nagahara and I. Kushiro (1981b), Volatilization of sodium from silicate melt sphres and its application to the formation of chondrules, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 45, 1357-1367.
- [47] Tsuchiyama A., Kawabata T., Kondo M., Uesugi K., Nakano T., Suzuki Y., Yagi N., Umetani K. and Shirono S. (1999) Spinning chondrules deduced from their three-dimensional structures by x-ray, *Lunar and Planetary Science*, XXXI, 1566-1567
- [48] Tsukamoto K., Satoh H., Takamura Y. and Kuribayashi K. (1999) A new approach for the formation of olivine-chondrules by aero-acoustic levitation, *Antarctic Meteorites*, 24, 179-181
- [49] Tsukamoto K., Kobatake H., Nagashima K., Satoh H. and Yurimoto Y. (2000) Crystallization of cosmic materials in microgravity, *Antarctic Meteorites*, 25, 172-174
- [50] Tsukamoto K., Kobatake H., Nagashima K., Satoh H. and Yurimoto Y. (2001) Crystallization of cosmic materials in microgravity, *Lunar and Planetary Science*, 31, 1846-1846
- [51] Volmer M. (1939) in *Kinetic der Phasenbildung*, pp. 239-252
- [52] Weidenschilling S.J., Marzari F. and Hood L.L. (1998) The origin of chondrules at jovian resonances, *Science*, 279, 681-684
- [53] Yokoyama E., Irisawa T., Satoh H., Nagashima K. and Tsukamoto K., Formation of rims surrounding a chondrule during solidification using the phase field model in three dimensions, in preparation
- [54] Zanda, B. (2004), Chondrules, *Earth Planet. Sci. Lett.*, 224, 1-17

本報告書収録の学術雑誌等発表論文は本ファイルに登録しておりません。なお、このうち東北大学在籍の研究者の論文で、かつ、出版社等から著作権の許諾が得られた論文は、個別に **TOUR** に登録しております。